

PCT

世界知的所有権機関
国際事務局

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

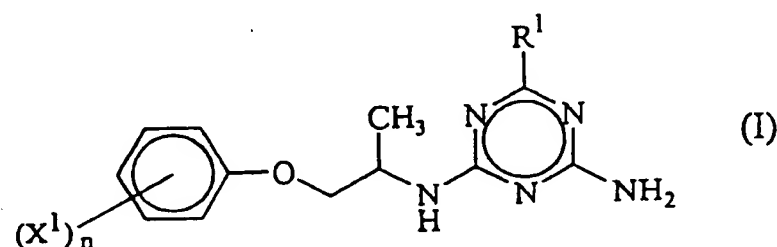


(51) 国際特許分類6 A01N 43/68, 43/80	A1	(11) 国際公開番号 WO98/10654 (43) 国際公開日 1998年3月19日(19.03.9)
(21) 国際出願番号 PCT/JP97/03158 (22) 国際出願日 1997年9月8日(08.09.97) (30) 優先権データ 特願平8/240584 1996年9月11日(11.09.96) JP (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 出光興産株式会社(IDEMITSU KOSAN CO., LTD.)(JP/JP) 〒100 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo, (JP) (72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 尾川新一郎(OGAWA, Shin-ichiro)(JP/JP) 高橋一幸(TAKAHASHI, Kazuyuki)(JP/JP) 〒299-02 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba, (JP) (74) 代理人 弁理士 東平正道(TOHEI, Masamichi) 〒299-01 千葉県市原市姉崎海岸24番地4 出光興産株式会社内 Chiba, (JP)		(81) 指定国 AL, AM, AU, BB, BG, BR, CA, CN, CU, EE, F, GE, GH, HU, ID, IL, IS, KG, KR, LC, LK, LR, LT, LV, MD, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, SG, SI, SK, SL, TR, TT, UA, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO特許 (GH, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TN, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG). 添付公開書類 国際調査報告書
(54)Title: HERBICIDAL COMPOSITIONS (54)発明の名称 除草剤組成物 (57) Abstract Herbicidal compositions with which weeds over a wide range, in particular, broad-leaved weeds and grassy weeds can be effectively controlled at a low dosage without damaging crops such as wheat and turf. These compositions containing as the active ingredients (A) triazine derivatives represented by general formula (I) and/or salts thereof; and (B) isoxaben, wherein X ¹ represents C ₁₋₄ alkyl or halogeno; n is from 0 to 4; and R ¹ represents C ₁₋₁₀ alkyl optionally having 1 to 4 substituents selected from among C ₁₋₄ alkoxy and hydroxy. <div style="text-align: center;"> <p>(I)</p> </div>		

(57) 要約

ムギなどの作物および芝生に対して薬害を及ぼすことなく、低薬量で広範な雑草、特に広葉雑草およびイネ科雑草を効果的に防除しうる除草剤組成物である。

具体的には、(A) 一般式 (I)



(式中、 X^1 は炭素数1～4のアルキル基またはハロゲン原子、 n は0～4、 R^1 は炭素数1～10のアルキル基であり、このアルキル基は炭素数1～4のアルコキシ基及びヒドロキシ基の中から選ばれた基1～4個によって置換されている。))

で表されるトリアジン誘導体および／またはその塩と、(B) イソキサベンとを有効成分として含有する除草剤組成物である。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に記載されたPCT加盟国を特定するために使用されるコード (参考情報)

AL	アルバニア	ES	スペイン	LK	スリランカ	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FR	フランス	LS	レソト	SI	スロベニア
AU	オーストラリア	GA	ガボン	LT	リトアニア	SK	スロバキア共和国
AZ	アゼルバイジャン	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SL	シエラレオネ
BA	ボスニア・エルツェゴビナ	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	SN	セネガル
BB	バルバドス	GH	ガーナ	MC	モナコ	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ共和国	TD	チャド
BF	ブルキナ・ファソ	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TC	タークス
BG	ブルガリア	CW	ギニア・ビサウ	MK	マケドニア共和国	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GR	ギリシャ		マリ	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	HU	ハンガリー	ML	マリ	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	ID	インドネシア	MN	モンゴル	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	IE	アイルランド	MR	モーリタニア	UA	ウクライナ
CC	中央アフリカ共和国	IL	イスラエル	MW	マラウイ	UG	ウガンダ
CG	コンゴ	IS	アイスランド	MX	メキシコ	US	米国
CH	スイス	IT	イタリア	NE	ニジェール	UZ	ウズベキスタン
CI	コート・ジボアール	JP	日本	NL	オランダ	VN	ヴィエトナム
CM	カメルーン	KE	ケニア	NO	ノルウェー	YU	ユーゴスラビア
CN	中国	KR	韓国	NZ	ニュージーランド	ZW	ジンバブエ
CU	キューバ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
CZ	チェコ共和国	KP	朝鮮民主主義人民共和国	PT	ポルトガル		
DE	ドイツ	KR	大韓民国	RO	ルーマニア		
DK	デンマーク	KZ	カザフスタン	RU	ロシア連邦		
EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SD	スーダン		

明細書

除草剤組成物

技術分野

本発明は除草剤組成物に関し、さらに詳しくは、ムギなどの作物および芝生に対して薬害を与えることなく、低薬量で広範な雑草、特に広葉雑草およびイネ科雑草を効果的に防除しうる除草剤組成物に関する。

背景技術

これまでに種々の除草剤が開発され、農作物の生産性向上および省力化に寄与してきた。しかし、これまで開発された除草剤は、殺草スペクトルが十分に広いとはいえず、難防除雑草が増えてきているのが現状であり、より殺草スペクトルの広い除草剤が求められている。また、環境に対する影響が少なく、低薬量で除草効果の高い除草剤が求められている。

本発明者らは、後記する一般式（I）で表されるトリアジン誘導体またはその塩（以下、トリアジン誘導体（I）という）が、ムギ類および芝生に対して高い安全性を有し、且つ低薬量で除草効果が高い化合物であることを見出し、すでに特許出願を行っている（特願平7-29124号、国際公開90-09378号公報）。

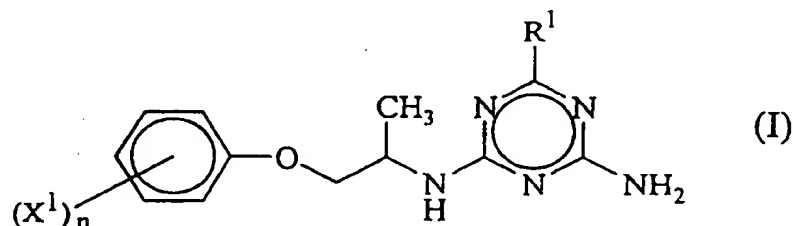
上記トリアジン誘導体（I）は、高い作物-雑草間選択性を有するものであるが、さらに低薬量で、より広範な雑草を防除できる除草剤が求められている。

発明の開示

本発明は、このような状況下で、ムギなどの作物および芝生に対して薬害を与えることなく、低薬量で広範な雑草、特に広葉雑草およびイネ科雑草を効果的に防除することができ、農作物の更なる生産性の向上および省力化などに寄与し得る除草剤組成物を提供することを目的とするものである。

本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、該トリアジン誘導体 (I) とイソキサベンとを併用すれば、これらの化合物の相乗作用により、その目的を達成しうることを見出し、この知見に基づいて本発明を完成するに至った。

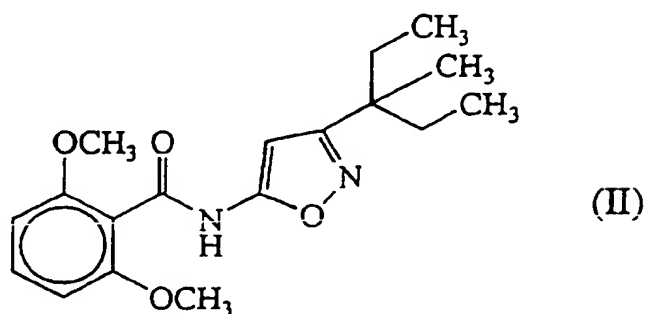
したがって、本発明の目的は、(A) 一般式 (I)



(式中、X¹ は直鎖状若しくは分岐状の、炭素数 1～4 のアルキル基またはハロゲン原子であり、n は 0～4 の整数であり、n が 2 以上の整数である場合、複数の X¹ は互いに同一でもよく、異なってもよい。)

R¹ は直鎖状若しくは分岐状の、炭素数 1～10 のアルキル基であり、このアルキル基は、炭素数 1～4 のアルコキシ基及びヒドロキシ基の中から選ばれた基 1 個または同一若しくは異なる基 2～4 個によって置換されていてもよい。)

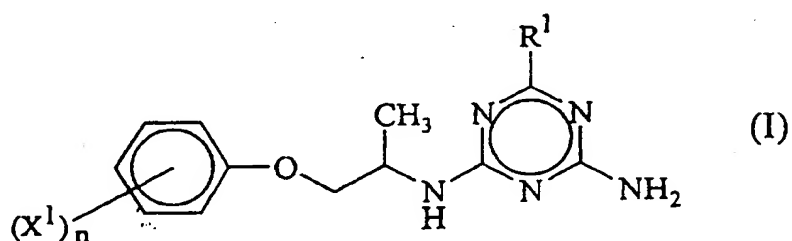
で表されるトリアジン誘導体および／またはその塩と、(B) 式 (II)



で表される化合物（一般名イソキサベン）とを有効成分として含有する除草剤組成物によって達成される。

発明を実施するための最良の形態

本発明の除草剤組成物においては、第一の有効成分として、（A）成分である一般式（I）



で用いられるトリアジン誘導体および／またはその塩が用いられる。

上記一般式（I）において、X¹ は直鎖状若しくは分岐状の、炭素数 1～4 のアルキル基またはハロゲン原子を示す。

ここで、X¹ が、直鎖状若しくは分岐状の、炭素数 1～4 のアルキル基である場合の具体例としては、例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、i-ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、シクロプロピル基、シクロブチル基が挙げられ、好ましくはメチル基である。

X¹ がハロゲン原子である場合の具体例としては、例えば塩素原子

、臭素原子、フッ素原子、ヨウ素原子が挙げられ、好ましくはフッ素原子である。

X^1 の置換位置は、ベンゼン環の 2 ～ 6 位のいずれであってもよく、好ましくは 3 位および／または 5 位である。

上記一般式 (I) において、 n は 0 ～ 4 の整数を表し、好ましくは 0、1 または 2 であり、特に好ましくは 1 または 2 である。

ここで、 n が 2 以上の整数である場合、複数の X^1 は互いに同一でもよく、異なってもよい。

上記一般式 (I) において、 R^1 は直鎖状若しくは分岐状の、炭素数 1 ～ 10 のアルキル基であり、このアルキル基は、炭素数 1 ～ 4 のアルコキシ基及びヒドロキシル基の中から選ばれた基 1 個、または同一若しくは異なる基 2 ～ 4 個によって置換されていてもよい。ここで、 R^1 が、これらの基によって置換されていない、直鎖状若しくは分岐状の、炭素数 1 ～ 10 のアルキル基である場合の具体例としては、例えば上記 X^1 において説明した炭素数 1 ～ 4 のアルキル基に加え、 n -ペンチル基、 i -ペンチル基、 sec -ペンチル基、 $tert$ -ペンチル基、 n -ヘキシル基、 i -ヘキシル基、 sec -ヘキシル基、 $tert$ -ヘキシル基、 n -ヘプチル基、 i -ヘプチル基、 sec -ヘプチル基、 $tert$ -ヘプチル基、 n -オクチル基、 i -オクチル基、 sec -オクチル基、 $tert$ -オクチル基、 n -ノニル基、 i -ノニル基、 sec -ノニル基、 $tert$ -ノニル基、 n -デシル基、 i -デシル基、 sec -デシル基、 $tert$ -デシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基等が挙げられ、好ましくはメチル基、エチル基、 n -プロピル基、 i -プロピル基、シクロプロピル基、 sec -ブチル基、 $tert$ -ブチル基、 i -ブチル基、 n -ペンチル基、シクロヘキシル基である。

また、 R^1 が炭素数 1～4 のアルコキシ基によって置換されている炭素数 1～10 のアルキル基の場合、置換基である炭素数 1～4 のアルコキシ基の具体例としては、例えばメトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、*i*-プロポキシ基、*n*-ブトキシ基、*i*-ブトキシ基、*tert*-ブトキシ基等が挙げられ、好ましくはメトキシ基、*tert*-ブトキシ基であり、特に好ましくはメトキシ基である。

R^1 が炭素数 1～4 のアルコキシ基及びヒドロキシル基の中から選ばれた基 2～4 個で置換されている炭素数 1～10 のアルキル基である場合、各置換基は互いに同一であってもよいし、異なってもよい。

R^1 が炭素数 1～4 のアルコキシ基及びヒドロキシル基の中から選ばれた基 1～4 個によって置換されている炭素数 1～10 のアルキル基である場合の具体例としては、例えば CH_3 、 OCH_2- 基、 CH_3 、 OC_2H_4- 基、 CH_3 、 OC_3H_6- 基、 CH_3 、 OC_4H_8- 基、 C_2H_5 、 OCH_2- 基、 C_2H_5 、 OC_2H_4- 基、 C_2H_5 、 OC_3H_6- 基、 C_2H_5 、 OC_4H_8- 基、 C_2H_5 、 $OC_5H_{10}-$ 基、 $HOCH_2-$ 基、 $HO C_2H_4-$ 基、 $HO C_3H_6-$ 基、 $HO C_4H_8-$ 基、 $(CH_3O)_2CH-$ 基、 $(CH_3O)_2C_2H_3-$ 基、 $(CH_3O)_2C_3H_5-$ 基、 $(CH_3O)_2C_4H_7-$ 基、 $CH_3(OCH_3)CH-$ 基、 $C_2H_5(OCH_3)CH-$ 基、 $CH_3OCH_2(CH_3)CH-$ 基、 $CH_3O(CH_3)_2C-$ 基、 $(CH_3O)_3C-$ 基、 $CH_2OH(CH_3)_2C-$ 基、 $(CH_3)_2COH-$ 基、 $C_2H_5(OH)CH-$ 基、メトキシ基で置換されたシクロプロピル基、メトキシ基で置換されたシクロブチル基、メトキシ基で置換されたシクロペンチル基、メトキシ基で置換されたシクロヘキシル基、エトキシ基で置換されたシクロペンチル基、エトキシ基で置換されたシクロヘ

キシル基などが挙げられる。

R' は、好ましくは炭素数 1～4 のアルコキシ基及びヒドロキシ基の中から選ばれた基 1～4 個で置換されている直鎖状若しくは分岐状の、炭素数 1～8 のアルキル基である。より好ましくは 1 または 2 個の炭素数 1～4 のアルコキシ基で置換されている直鎖状若しくは分岐状の、炭素数 1～4 のアルキル基、または 1 個のヒドロキシ基で置換されている直鎖状若しくは分岐状の、炭素数 1～4 のアルキル基である。さらに好ましくは、R' は、1 個のメトキシ基または 1 個のヒドロキシ基によって置換された、直鎖状若しくは分岐状の、炭素数 1～4 のアルキル基である。

トリアジン誘導体 (I) には光学異性体が存在し、通常ラセミ体として得られるが、不斉合成などの既知の方法で対掌体の一方のみを得ることも可能である。本発明のトリアジン誘導体 (I) は、ラセミ体であっても、あるいは光学異性体単独であっても除草活性を示すものである。トリアジン誘導体 (I) は、上記ラセミ体および上記それぞれの光学異性体を包含するものである。

さらに、トリアジン誘導体 (I) は、無機酸または有機酸の塩であっても除草活性成分として使用し得る。

ここで、一般式 (I) で表されるトリアジン誘導体と塩を形成する酸としては、例えば、塩酸、ヨウ化水素酸、臭化水素酸、フッ化水素酸、硫酸、硝酸、リン酸等の無機酸；および酢酸、メタンスルホン酸、トルエンスルホン酸などのスルホン酸等の有機酸が挙げられる。

トリアジン誘導体 (I) の具体例を、下記の第 1 表～第 3 表に示す。

第 1 表

化合物 番号	構 造 式	化 合 物 名
A-1		2-アミノ-4-〔2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ) -1-メチル-エチルアミノ〕 -6-イソプロピル-1, 3, 5-トリアジン
A-2		2-アミノ-4-t-ブチル- 6-〔2-(3', 5'-ジメ チルフェノキシ)-1-メチル -エチルアミノ〕-1, 3, 5 -トリアジン
A-3		2-アミノ-4-sec-ブチ ル-6-〔2-(3', 5'- ジメチルフェノキシ)-1-メ チル-エチルアミノ〕-1, 3 , 5-トリアジン
A-4		2-アミノ-4-シクロプロピ ル-6-〔2-(3', 5'- ジメチルフェノキシ)-1-メ チル-エチルアミノ〕-1, 3 , 5-トリアジン

第 2 表

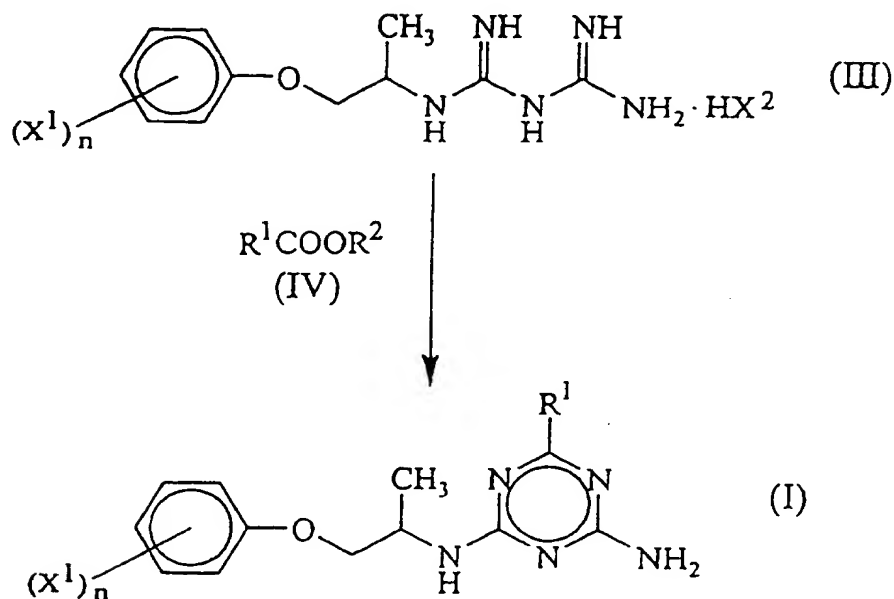
化合物 番号	構 造 式	化 合 物 名
A-5		2-アミノ-4- α -ブチル- 6-[2-(3'-フルオロフェ ノキシ)-1-メチル-エチ ルアミノ]-1,3,5-トリ アジン
A-6		2-アミノ-4-[2-(3' ,5'-ジメチルフェノキシ) -1-メチル-エチルアミノ] -6-(α -メトキシ- α -メ チルエチル)-1,3,5-トリ アジン
A-7		2-アミノ-4-[2-(3' ,5'-ジメチルフェノキシ) -1-メチル-エチルアミノ] -6-(α -メチル- β -メト キシエチル)-1,3,5-トリ アジン
A-8		2-アミノ-4-[2-(3' ,5'-ジメチルフェノキシ) -1-メチル-エチルアミノ] -6-(α -メトキシ-n-ブ ロピル)-1,3,5-トリ アジン

第 3 表

化合物 番号	構 造 式	化 合 物 名
A-9		2-アミノ-4-〔2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ〕-6-(α -ヒドロキシ-n-プロピル)-1, 3, 5-トリアジン
A-10		2-アミノ-4-エチル-6-〔2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ〕-1, 3, 5-トリアジン
A-11		2-アミノ-4-メチル-6-〔2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ〕-1, 3, 5-トリアジン
A-12		2-アミノ-4-n-プロピル-6-〔2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ〕-1, 3, 5-トリアジン

本発明の除草剤組成物の（A）成分であるトリアジン誘導体（I）は、本願出願人により出願された特願平 7 - 2 9 1 2 4 号明細書および国際公開 9 0 - 0 9 3 7 8 号公報に掲載された方法により製造することができる。

即ち、下記の反応式



（反応式中、X¹、n および R¹ は、前記一般式（I）において定義したとおりであり、X² はハロゲン原子であり、R² は炭素数 1 ～ 4 のアルキル基である。）に従い、アルキルビグアニドの塩（III）をエステル類（IV）と反応させることにより製造することができる。

本反応は、触媒の存在下に行うのが好ましく、本反応で用いることができる触媒としては、例えばナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、マグネシウムジエトキシド等のアルコキシド類；リン酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等の無機塩基；および 1, 8 - ジアザビスクロ [5, 4, 0] - 7 - ウンデセン（DBU）、1, 5 - ジアザビスクロ [4, 3, 0] - 5 - ノネン（DBN）、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基が挙げられ

、好ましくはナトリウムメトキシドおよびナトリウムエトキシドである。

用いる触媒の量は、通常アルキルビグアニドの塩 (III) に対して 1 . 1 ~ 1 0 当量、好ましくは 1 . 5 ~ 2 当量である。

本反応で用いるエステル類 (IV) の量は、通常アルキルビグアニドの塩 (III) に対して 1 ~ 1 0 当量、好ましくは 1 ~ 2 当量である。

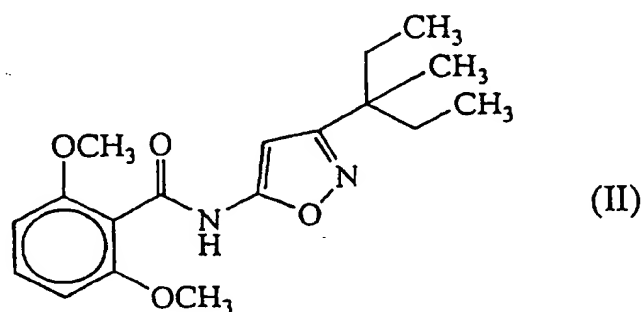
本反応は、溶媒の存在下に行うのが好ましく、本反応で用いることができる溶媒としては、例えばメタノール、エタノール、イソプロパノール等のアルコール類；アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類；n-ヘキサン、n-ヘプタン、n-デカン等の脂肪族炭化水素類；ベンゼン、デカリン、アルキルナフタレン等の環状炭化水素類；四塩化炭素、二塩化メチレン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン等の塩化炭化水素類；およびテトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類などが挙げられ、好ましくはアルコール類であり、特に好ましくはメタノールおよびエタノールである。

本反応では、エステル類 (IV) の加水分解を防ぐために、脱水剤を使用することができる。本発明の方法において用いることができる脱水剤としては、例えばモレキュラーシーブ、無水硫酸カルシウム、無水硫酸ナトリウム、炭酸ナトリウム、酸化カルシウム、酸化アルミニウム、硫酸マグネシウム、炭酸カリウム、酸化バリウム等が挙げられ、モレキュラーシーブ、無水硫酸カルシウムが特に好ましい。脱水剤の量は、アルキルビグアニドの塩 (III) に対して 1 0 から 2 0 0 重量%であり、好ましくは 5 0 ~ 1 0 0 重量%である。

本反応の反応温度は、通常 - 1 0 ~ 1 5 0 °C であり、好ましくは - 1 0 ~ 1 2 0 °C である。反応時間は、通常 2 ~ 3 0 時間であるが、1 0 ~ 1 5 時間程度が好ましい。

反応終了後、常法に従い、反応混合物を水に注加し、酢酸エチル等の有機溶媒で目的物を抽出し、得られた有機層を無水硫酸ナトリウム等の脱水剤で脱水した後、有機溶媒を減圧下に留去する等の手段により除去する。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー等の手段により精製することにより目的のトリアジン誘導体（I）を結晶として単離することができる。

本発明の除草剤組成物においては、第二の有効成分として、（B）成分である式（II）



で表される化合物〔化学名：N-〔3-（1-エチル-1-メチルプロピル）イソオキサゾール-5-イル〕-2,6-ジメトキシベンズアミド、一般名：イソキサベン（isoxaben）〕が用いられる。このイソキサベンは、公知の方法により製造することができ、また、市販品として入手可能である。

本発明の除草剤組成物は、（A）成分の前記トリアジン誘導体（I）と（B）成分の上記イソキサベンとの混合物（以下、有効成分混合物と記す）を、溶媒などの液状担体または鉱物質微粉などの固体担体と混合し、水和剤、乳剤、粉剤、粒剤などの形態に製剤化して使用することができる。また、本発明の除草剤組成物は、前記（A）成分および（B）成分を各々液状担体または固体担体と混合して別々に製剤化した後、二つの製剤を混合することにより製造してもよい。製剤化

に際して乳化性、分散性、展着性などを付与するために界面活性剤を添加し得る。

本発明の除草剤組成物においては、(A)成分のトリアジン誘導体(I)と(B)成分のイソキサベンとの配合割合は、作物の種類、防除対象となる雑草の種類、気候等の条件により適宜決定すべきであるが、好ましくは重量比10:1~1:100、より好ましくは10:1~1:10である。

本発明の除草剤組成物を水和剤の形態で用いる場合、通常は有効成分混合物10~55重量%、固体担体40~88重量%および界面活性剤2~5重量%の割合で配合して組成物を調製し、これを用いればよい。

また、乳剤の形態で用いる場合、通常は有効成分混合物20~50重量%、溶剤35~75重量%および界面活性剤5~15重量%の割合で配合して調製すればよい。

また、粉剤の形態で用いる場合、通常は有効成分混合物1~15重量%、固体担体80~97重量%および界面活性剤2~5重量%の割合で配合して調製すればよい。

さらに、粒剤の形態で用いる場合、通常は有効成分混合物1~15重量%、固体担体80~97重量%および界面活性剤2~5重量%の割合で配合して調製すればよい。

ここで固体担体としては鉱物質の微粉が用いられ、この鉱物質の微粉としては、例えばケイソウ土、消石灰などの酸化物、リン灰石などのリン酸塩、セッコウなどの硫酸塩、タルク、パイロフェライト、クレー、カオリン、ベントナイト、酸性白土、ホワイトカーボン、石英粉末、ケイ石粉などのケイ酸塩などを挙げることができる。

また、溶剤としては有機溶媒が用いられ、具体的にはベンゼン、ト

ルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素、オークロトルエン、トリクロロエタン、トリクロロエチレンなどの塩素化炭化水素、シクロヘキサノール、アミルアルコール、エチレングリコールなどのアルコール、イソホロン、シクロヘキサノン、シクロヘキセニル-シクロヘキサノンなどのケトン、ブチルセロソルブ、ジエチルエーテル、メチルエチルエーテルなどのエーテル、酢酸イソプロピル、酢酸ベンジル、フタル酸メチルなどのエステル、ジメチルホルムアミドなどのアミドあるいはこれらの混合物を挙げることができる。

界面活性剤としては、アニオン型、ノニオン型、カチオン型あるいは両性イオン型（アミノ酸、ペタインなど）のいずれを用いることもできる。

さらに、本発明の除草剤組成物は、必要に応じて、殺虫剤、殺菌剤、植物生長調節剤、肥料などを含有することができる。

本発明の除草剤組成物は、例えば、雑草の発芽前又は発芽後に、雑草またはその生育地に施用される。

施用手段は、栽培植物および使用環境により異なるが、例えば、噴霧、散水、散布、注水等であり得る。

本発明の除草剤組成物は、例えば、イネ、コムギ、オオムギ、トウモロコシ、エンバク、ソルガム等のイネ科植物、ダイズ、ワタ、ビート、ヒマワリ、ナタネ等の広葉作物の栽培において有用であり、その他果樹、果菜類、根菜類、葉菜類等の野菜や芝生等にも有用である。

本発明の除草剤組成物は、例えば、オオイヌノフグリ、スミレ、イヌタデ、ヤエムグラ、カミツレ、オドリコソウ、ヒナゲシ、ノスズメノテッポウ、スズメノカタビラ、野生エンバク、イチビ、オナモミ、アサガオ、シロザ、アオビユ、チョウセンアサガオ、イヌハウズキ、エノコログサ、メヒシバ、オニノゲシ、セイヨウタンポポ、シャツタ

ーケーン、ノビユ、コナギ、キカシグサ、アゼナ、ミゾハコベ、イヌホタルイ、タマガヤツリ、マツバイ、ミズガヤツリ、ウリカワ、オモダカ等の雑草の防除に有用である。

実施例

以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

<参考例 1> 化合物 A-4 (トリアジン誘導体 (I)) の製造:

特開昭 63-264465 号公報に記載の方法を用いて合成した 2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ) イソプロピルビグアニド塩酸塩 5.00 g (16.7 mmol) に、室温で攪拌しながらナトリウムメトキシド 28 重量% メタノール溶液 9.66 g (50.1 mmol) を加え、更にシクロプロピルカルボン酸メチル 5.01 g (50.1 mmol) を滴下した。反応混合物を 7 時間還流加熱した後、析出物を濾別し、濾液をエバポレーターにより濃縮した。得られた残渣に酢酸エチル 50 ml と水 50 ml を加え、分液した。酢酸エチル層を水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、エバポレーターにより溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン/酢酸エチル=容量比 1/1) により精製し、目的の 2-アミノ-4-シクロプロピル-6-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1, 3, 5-トリアジン (化合物 A-4) 4.18 g (収率 80%) を得た。

<参考例 2> 化合物 A-5 (トリアジン誘導体 (I)) の製造:

特開昭 63-264465 号公報記載の方法を用いて合成した 2-(3'-フルオロフェノキシ) イソプロピルビグアニド塩酸塩 5.00 g (19.9 mmol) に、ナトリウムメトキシド 28 重量% メタ

ノール溶液 11.5 g (59.7 mmol) を室温で攪拌しながら加えた。さらに、ここにトリメチル酢酸メチル 6.93 g (59.7 mmol) を滴下した。反応液を 7 時間還流加熱した後、析出物を濾別し、濾液をエバポレーターにより濃縮した。得られた残渣に酢酸エチル 50 ml と水 50 ml を加え、分液した。酢酸エチル層を水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、エバポレーターにより溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン／酢酸エチル＝容量比 1／1）により精製し、目的の 2-アミノ-4-tert-ブチル-6-[2-(3'-フルオロフェノキシ)-1-メチル-エチルアミノ]-1,3,5-トリアジン（化合物 A-5）4.77 g（収率 85%）を得た。

参考例 1 および 2 に準じて、化合物 A-1～A-3、A-6～A-9 を製造した。

< 製剤例 >

以下、本発明の除草剤組成物の製剤例を示す。

尚、製剤例 1～4 中、化合物 A-1～A-9 は、前記表 1～表 3 に示したトリアジン誘導体であり、化合物 B は、前記式 (II) で表される化合物〔化学名：N-[3-(1-エチル-1-メチルプロピル)イソオキサゾール-5-イル]-2,6-ジメトキシベンズアミド、一般名：イソキサベン、商品名：ターザイン（大日本インキ化学社製）〕である。

また製剤例中、部は重量部を表す。

製剤例 1：水和剤

化合物 A-2	5 部
化合物 B	5 部
ケイソウ土	72 部

ホワイトカーボン	1 5 部
アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム	2 部
リゲニンスルホン酸ナトリウム	1 部

上記成分を均一に混合粉碎することにより、水和剤を調製した。

製剤例 2 : 乳剤

化合物 A - 2	1 0 部
化合物 B	1 0 部
キシレン	4 0 部
ジメチルホルムアミド	2 0 部
ソルポール 2 8 0 6 B (東邦化学工業社製)	2 0 部

上記成分を均一に溶解混合することにより、乳剤を調製した。

製剤例 3 : フロアブル剤

化合物 A - 2	1 0 部
化合物 B	1 0 部
メチルセルロース	0 . 5 部
コロイド状シリカ	1 . 5 部
リゲニンスルホン酸ナトリウム	1 部
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル	2 部
水	7 5 部

上記成分を均一に混合分散させ、得られたスラリー状混合物を湿式粉碎することにより、フロアブル剤を調製した。

製剤例 4 : 水和剤

担体としてクレー (商品名 : ジークライト、ジークライト工業製) 9 7 部、界面活性剤としてアルキルアリアルスルホン酸塩 (商品名 : ネオペレックス、花王アトラス (株) 製) 1 . 5 部、およびノニオン型とアニオン型の界面活性剤混合物 (商品名 : ソルポール 8 0 0 A、

東邦化学工業（株）製） 1. 5 部を均一に粉碎混合して、水和剤用担体を得た。

この水和剤用担体 9 0 部とトリアジン誘導体（化合物 A - 1 ~ A - 9） 1 0 部を均一に粉碎混合して、それぞれ水和剤 A - 1 ~ A - 9 を得た。また、上記水和剤用担体 9 0 部と化合物 B（イソキサベン） 1 0 部を均一に粉碎混合して、水和剤 B を得た。

上記で得られた水和剤 A - 1 ~ A - 9（以下、水和剤 A と総称する）と水和剤 B とを、それぞれ第 4 表および第 7 表に示す薬量に対応する重量比で混合し、化合物 A - 1 ~ A - 9 および化合物 B を種々の組み合わせで含有する、本発明の除草剤組成物としての水和剤を得た。

< 除草試験例 >

試験例 1 :

畑地土壌を充填した 1 / 2 0 0 0 アールワグネルポットに畑地土壌を入れて、作物としてオオムギ、コムギおよびエンバク、雑草としてヤエムグラ、オオイヌノフグリおよびスミレの種子を播種し、覆土後、温室内で育成した。

上記製剤例 4 で製造した本発明の除草剤組成物としての水和剤を水に懸濁し、各濃度の除草剤懸濁液を調製し、これを播種から 3 日後に、各々 5 0 0 リットル / ヘクタール相当の液量で、下記第 4 表に示す薬量になるようにポット全面に均一にスプレー散布した。

その後、温室内で育成し、処理後 3 0 日目に作物への薬害および除草効果を下記の基準により判定した。結果を下記の第 4 表に示す。

作物薬害

0	認められない
1	ほとんど認められない

2	若干認められる
3	認められる
4	顕著に認められる
5	ほとんど枯死

除草効果	殺草率 (%)
0	5 % 未満
1	5 % 以上 20 % 未満
2	20 % 以上 40 % 未満
3	40 % 以上 70 % 未満
4	70 % 以上 90 % 未満
5	90 % 以上

殺草率は、雑草の地上部の新鮮量を測定し、下記の式により算出した。

$$\text{殺草率 (\%)} = (1 - \text{処理区の新鮮量} / \text{無処理区の新鮮量}) \times 100$$

比較のために、本発明の除草剤組成物としての水和剤の代わりに、上記製剤例 4 で調製した水和剤 A および水和剤 B を各々単独で用いた以外は、上記と同様の評価方法により、薬害および除草効果を調べた。結果を下記の第 5 表に示す。

第 4 表

トリアジン誘導体		化合物B		除草効果			薬 害		
有効成分	薬 量 (g/ha)	有効成分	薬 量 (g/ha)	ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	スミレ	オオム ギ	コムギ	エンバ ク
A-1	100 50	B	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-2	100 50	B	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-3	100 50	B	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-4	100 50	B	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-5	100 50	B	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-6	100 50	B	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-7	100 50	B	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-8	100 50	B	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0
A-9	100 50	B	200 100	5 5	5 5	5 5	0 0	0 0	0 0

第 5 表

有効成分		薬 量 (g/ha)	除草効果			薬 害		
			ヤエム グラ	オオイヌ ノフグリ	スマレ	オオムギ	コムギ	エンバク
トリ アジン 誘導体	A-1	100 50	2 1	5 3	5 4	0 0	0 0	0 0
	A-2	100 50	3 2	5 4	5 4	0 0	0 0	0 0
	A-3	100 50	3 1	5 3	4 3	0 0	0 0	0 0
	A-4	100 50	3 1	4 2	4 3	0 0	0 0	0 0
	A-5	100 50	2 2	5 3	5 4	0 0	0 0	0 0
	A-6	100 50	3 2	5 4	5 4	0 0	0 0	0 0
	A-7	100 50	3 1	5 3	4 4	0 0	0 0	0 0
	A-8	100 50	2 1	4 3	4 2	0 0	0 0	0 0
	A-9	100 50	2 1	4 4	4 2	0 0	0 0	0 0
化合物 B		200 100	2 2	3 3	3 2	0 0	0 0	0 0

第 4 表および第 5 表の結果から、水和剤 A および水和剤 B を混合してなる本発明の除草剤組成物は、ヤエムグラ、オオイヌノフグリ、スミレのいずれの雑草に対しても優れた除草効果を示し、かつオオムギ、コムギ、エンバクに対して薬害を与えないのに対し、水和剤 A、水和剤 B を各々単独で施用した場合には雑草の種類によって除草効果に差があり、十分な除草効果が得られない場合があった。

試験例 2 :

本発明の除草剤組成物の相乗効果を評価するために、上記試験例 1 で測定した水和剤 A、水和剤 B を各々単独で処理した場合のヤエムグラに対する殺草率から、下記式に基づいて予測値 (Q E) を計算し、上記試験例 1 で測定した本発明の除草剤組成物としての水和剤を施用した場合のヤエムグラに対する殺草率 (実測値) と比較した。実測値が予測値を超えた場合に、相乗効果があると判断される。

$$Q E = Q a + Q b - (Q a \cdot Q b / 100)$$

Q E : 予測値

Q a : 化合物 A - 1 ~ A - 9 のみを有効成分として a グラム / ヘクタール相当の量で施用したときの殺草率の実測値

Q b : 化合物 B のみを有効成分として b グラム / ヘクタール相当の量で施用したときの殺草率の実測値

結果を下記の第 6 表に示す。

第 6 表

トリアジン誘導体		化合物B		除草効果 (ヤエムグラ)		
有効成分	薬量 (g/ha)	有効成分	薬量 (g/ha)	実測値 殺草率 (%)	予測値QE 殺草率 (%)	Δ^* (%)
A-1	50	B	100	90	49	41
A-2	50	B	100	95	57	38
A-3	50	B	100	91	49	42
A-4	50	B	100	92	48	44
A-5	50	B	100	96	59	37
A-6	50	B	100	94	53	41
A-7	50	B	100	90	49	41
A-8	50	B	100	91	48	43
A-9	50	B	100	90	48	42

* Δ : 殺草率実測値 - 殺草率予測値

第 6 表の結果から、本発明の除草剤組成物の (A) 成分 (化合物 A-1 ~ A-9) と、(B) 成分 (化合物 B) との併用による除草効果の相乗性が、ヤエムグラの例をとると明らかである。すなわち、すべての本発明の除草剤組成物において、ヤエムグラに対する殺草率の実測値と予測値の差 (Δ) が 37 ~ 44 % であり、高い相乗効果を示すことが明らかになった。

試験例 3 :

畑地土壌を充填した 1 / 2000 アールワグナルポットに畑地土壌を入れて、芝生としてコウライシバおよびノシバのソッドを移植し、雑草としてスズメノカタビラ、メヒシバ、オニノゲシおよびセイヨウタンポポの種子を播種し、覆土後温室内で育成した。

上記製剤例 4 で製造した本発明の除草剤組成物としての水和剤を水

に懸濁し、各濃度の除草剤懸濁液を調製し、これを播種から3日後に、各々500リットル／ヘクタール相当の液量で、下記表8に示す薬量になるようにポット全面に均一にスプレー散布した。

その後、温室内で育成し、処理後30日目に芝生への薬害および除草効果を試験例1と同様の基準により判定した。ただし、試験例1では作物薬害であるが、本実施例では芝生薬害である。結果を下記の第7表に示す。

比較のために、本発明の除草剤組成物としての水和剤の代わりに、上記製剤例4で調製した水和剤Aおよび水和剤Bを各々単独で用いた以外は、上記と同様の評価方法により、薬害および除草効果を調べた。結果を下記の第8表に示す。

第 7 表

トリアジン誘導体		化合物B		除 草 効 果				薬 害	
有効成分	薬 量 (g/ha)	有効成分	薬 量 (g/ha)	スズメノ カタビラ	メヒシバ	オニノ ゲシ	セイヨウ タンポポ	コウラ イシバ	ノシバ
A-1	600 300	B	400 200	2 1	2 2	5 5	5 5	0 0	0 0
A-2	600 300	B	400 200	3 2	2 2	5 5	5 5	0 0	0 0
A-3	600 300	B	400 200	2 2	3 2	5 5	5 5	0 0	0 0
A-4	600 300	B	400 200	2 2	3 3	5 5	5 5	0 0	0 0
A-5	600 300	B	400 200	2 1	2 1	5 5	5 5	0 0	0 0
A-6	600 300	B	400 200	2 1	3 2	5 5	5 5	0 0	0 0
A-7	600 300	B	400 200	3 2	3 3	5 5	5 5	0 0	0 0
A-8	600 300	B	400 200	2 2	3 2	5 5	5 5	0 0	0 0
A-9	600 300	B	400 200	2 2	3 2	5 5	5 5	0 0	0 0

第 8 表

有効成分		薬 量 (g/ha)	除 草 効 果				薬 害	
			スズメノ カタビラ	メヒシバ	オニノ ゲシ	セイヨウ タンポポ	コウライ シバ	ノシバ
トリ ア ジ ン 誘 導 体	A-1	600 300	2 1	2 2	3 2	2 2	0 0	0 0
	A-2	600 300	3 2	2 2	3 3	3 2	0 0	0 0
	A-3	600 300	2 2	3 2	2 2	3 2	0 0	0 0
	A-4	600 300	2 2	3 3	3 3	2 2	0 0	0 0
	A-5	600 300	2 1	2 1	3 3	3 3	0 0	0 0
	A-6	600 300	2 1	3 2	3 2	3 2	0 0	0 0
	A-7	600 300	3 2	3 3	3 3	3 2	0 0	0 0
	A-8	600 300	2 2	3 2	3 2	2 2	0 0	0 0
	A-9	600 300	2 2	3 2	3 3	3 2	0 0	0 0
化合物B		400 200	0 0	0 0	4 4	5 4	0 0	0 0

第 7 表および第 8 表の結果から、水和剤 A および水和剤 B を混合してなる本発明の除草剤組成物は、スズメノカタビラ、メヒシバ、オニノゲシ、セイヨウタンポポのいずれの雑草に対しても除草効果を示し、特にオニノゲシおよびセイヨウタンポポに対して優れた除草効果を示し、かつコウライシバ、ノシバに薬害を与えないのに対し、水和剤 A、水和剤 B をそれぞれ単独で施用した場合には、オニノゲシおよびセイヨウタンポポに対する除草効果が、本発明の除草剤組成物に比べてかなり劣っていた。

試験例 4 :

本発明の除草剤組成物の各成分の相乗効果を評価するために、上記試験例 3 で測定した水和剤 A、水和剤 B を各々単独で処理した場合のオニノゲシに対する殺草率から、試験例 2 の場合と同様にして予測値 (QE) を計算し、上記試験例 3 で測定した本発明の除草剤組成物としての水和剤を施用した場合のオニノゲシに対する殺草率 (実測値) と比較した。実測値が予測値を超えた場合に、相乗効果があると判断される。結果を下記の第 9 表に示す。

第 9 表

トリアジン誘導体		化合物B		除草効果（オニノゲシ）		
有効成分	薬量 (g/ha)	有効成分	薬量 (g/ha)	実測値 殺草率（％）	予測値QE 殺草率（％）	Δ* （％）
A-1	300	B	200	98	85	13
A-2	300	B	200	99	86	13
A-3	300	B	200	97	84	13
A-4	300	B	200	99	86	13
A-5	300	B	200	100	88	12
A-6	300	B	200	96	85	11
A-7	300	B	200	99	87	11
A-8	300	B	200	100	88	12
A-9	300	B	200	97	85	12

* Δ：殺草率実測値－殺草率予測値

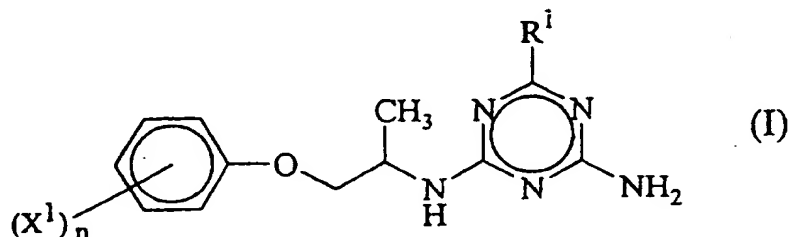
第9表の結果から、本発明の除草剤組成物の（A）成分（化合物A-1～A-9）と（B）成分（化合物B）との併用による除草効果の相乗性が、オニノゲシの例をとると明らかである。すなわち、すべての本発明の除草剤組成物において、オニノゲシに対する殺草率の実測値と予測値の差（Δ）が11～13％であり、良好な相乗効果を示すことが明らかになった。

産業上の利用可能性

本発明の除草剤組成物は、ムギなどの作物および芝生に対して薬害を及ぼすことなく、低薬量で広範な雑草、特に広葉雑草およびイネ科雑草を効果的に防除することができ、農作物のさらなる生産性の向上および省力化などに寄与することができる。

請求の範囲

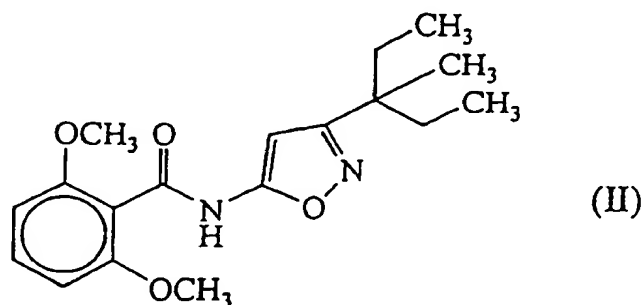
1. (A) 一般式 (I)



(式中、 X^1 は直鎖状若しくは分岐状の、炭素数 1～4 のアルキル基またはハロゲン原子であり、 n は 0～4 の整数であり、 n が 2 以上の整数である場合、複数の X^1 は互いに同一または異なっているもよい。

R^1 は直鎖状若しくは分岐状の、炭素数 1～10 のアルキル基であり、このアルキル基は、炭素数 1～4 のアルコキシ基及びヒドロキシ基の中から選ばれた基 1 個または同一若しくは異なる基 2～4 個によって置換されているもよい。)

で表される、トリアジン誘導体およびその塩からなる群から選択される 1 種または 2 種以上と、(B) 式 (II)



で表される化合物 (一般名 イソキサベン) とを有効成分として含有する除草剤組成物。

2. 一般式 (I) における X^1 がメチル基またはフッ素原子である、請求項 1 に記載の除草剤組成物。
3. 一般式 (I) における n が 1 または 2 である、請求項 2 に記載の除草剤組成物。
4. 一般式 (I) における X^1 の置換位置がフェノキシ基の 3 位および 5 位からなる群から選択されるものである、請求項 3 に記載の除草剤組成物。
5. (A) 成分と (B) 成分とを重量比 10 : 1 ~ 1 : 100 の割合で含有する、請求項 1 ないし 4 のいずれかに記載の除草剤組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application N .

PCT/JP97/03158

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl⁶ A01N43/68, 43/80

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl⁶ A01N43/68, 43/80

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CA (STN), REGISTRY (STN), WPIDS (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim N .
A	JP, 8-217763, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), August 27, 1996 (27. 08. 96), Claim & WO, 96/25404, A1	1 - 5
A	JP, 1-143805, A (Mitsui Toatsu Chemicals, Inc.), June 6, 1989 (06. 06. 89), Claim (Family: none)	1 - 5
A	JP, 60-233003, A (CIBA-Geigy AG.), November 19, 1985 (19. 11. 85), Claim 8 & EP, 163598, A1	1 - 5
A	JP, 58-157707, A (CIBA-Geigy AG.), September 19, 1983 (19. 09. 83), Claim & EP, 88049, A1 & GB, 2115284, A & US, 4461641, A	1 - 5

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
October 20, 1997 (20. 10. 97)

Date of mailing of the international search report
November 5, 1997 (05. 11. 97)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office
Facsimil No.

Authorized officer
Telephone No.

国際調査報告

国際出願 号 PCT/JP97/03158

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁴ A01N43/68, 43/80

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁴ A01N43/68, 43/80

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用了電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA (STN), REGISTRY (STN), WPIDS (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 8-217763, A (出光興産株式会社) 27. 8月. 1996 (27. 08. 96), 特許請求の範囲 & WO, 96/25404, A1	1-5
A	JP, 1-143805, A (三井東圧化学株式会社) 6. 6月. 1989 (06. 06. 89), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-5
A	JP, 60-233003, A (チバーガイギー アクチエンゲゼルシャフト) 19. 11月. 1985 (19. 11. 85), 特許請求の範囲第8項 EP, 163598, A1	1-5
A	JP, 58-157707, A (チバーガイギー・アクチエンゲゼルシャフト) 19. 9月. 1983 (19. 09. 83), 特許請求の範囲 & EP, 88049, A1 & GB, 2115284, A & US, 4461641, A	1-5

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

20. 10. 97

国際調査報告の発送日

05.11.97

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便 号100

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

唐木 以知良 印

4H

8018

電話番号 03-3581-1101 内線 3443